

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

EUROPEAN PATENT OFFICE

D4

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 58183601
PUBLICATION DATE : 26-10-83

APPLICATION DATE : 21-04-82
APPLICATION NUMBER : 57067013

APPLICANT : SHIN ETSU CHEM CO LTD;

INVENTOR : CHIBA TORU;

INT.CL. : A01N 25/28 B01J 13/02

TITLE : SEXUAL PHEROMONE OR AGRICULTURAL CHEMICAL PROCESSED INTO
MICROCAPSULE

ABSTRACT : PURPOSE: The titled substance or agricultural chemical capable of releasing continuously for a long time at a constant rate without loss, causing no environmental pollution, and having resistance to wind and rain, obtained by processing a sexual pheromone substance or agricultural chemical into microcapsules using a cellulose derivative containing a carboxyl group.

CONSTITUTION: A sexual pheromone substance or agricultural chemical is processed into microcapsules using a carboxyl group-containing cellulose derivative (e.g., hydroxypropyl methyl cellulose acetate succinate, hydroxypropyl methyl cellulose phthalate, etc.), to give a sexual pheromone or agricultural chemical processed into microcapsules. The cellulose derivative is soluble in an alkali aqueous solution but insoluble in an acid or neutral water. Soluble in an organic solvent such as ethylene glycol monoethyl ether, etc. The pheromone substance or agricultural chemical is suspended in water, and a small amount of the organic solvent is added to the suspension. The suspension is applied to crops, and the agent to form capsules is well attached to the crops.

COPYRIGHT: (C)1983,JPO&Japio

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報 (A)

昭58-183601

⑫ Int. Cl.⁵
A 01 N 25/28
B 01 J 13/02

識別記号

序内整理番号
7442-4H
8317-4G⑬ 公開 昭和58年(1983)10月26日
発明の数 1
審査請求 未請求

(全 5 頁)

⑭ マイクロカプセル化性フェロモン物質もしく
は農薬島28番地の1 信越化学工業株式
会社合成技術研究所内

⑮ 特願 昭57-67013

⑯ 発明者 千葉徹

⑯ 出願 昭57(1982)4月21日

新潟県中頸城郡頸城村大字西福
島28番地の1 信越化学工業株式

⑰ 発明者 山本昭

会社合成技術研究所内

新潟県中頸城郡頸城村大字西福
島28番地の1 信越化学工業株式
会社合成技術研究所内

⑱ 発明者 石原俊信

⑲ 出願人 信越化学工業株式会社
東京都千代田区大手町2丁目6
番1号

新潟県中頸城郡頸城村大字西福

⑳ 代理人 弁理士 山本亮一

明細書

1. 発明の名称

マイクロカプセル化性フェロモン物質もしく
は農薬

ロモン物質もしくは農薬に関する。

2. 特許請求の範囲

1. 性フェロモン物質もしくは農薬をカルボキシ
ル基を有するセルロース誘導体でマイクロカプ
セル化してなるマイクロカプセル化性フェロモ
ン物質もしくは農薬農虫性フェロモンや農薬についてはこのものを
高分子物質でマイクロカプセル化することにより
放出制御して、それらの効果を持続的に發揮させ
るようにし、より有効に使おうという試みがなさ
れており、従来、このマイクロカプセル化のため
の高分子物質としてゼラチンやポリアミド樹脂な
どが使用されている。2. 前記セルロース誘導体がアルカリ性水溶液に
可溶で、酸や中性の水に不溶である特許請求のしかし、このような目的に使用される高分子
物質に要求される性質としては、①一定期間一定
の速度でフェロモンや農薬を放出する(1)、②(2)

表面を作物に散布して使おうとする場合にこれを作物に付着させるべく接着剤を併用する必要があり、したがつて作業性が悪いという欠点がある。

本発明者らは上述した不利欠点を解決すべく観察研究した結果本発明を完成したもので、これは性フェロモン物質もしくは農薬を、分子中にカルボキシル基を有しアルカリ性に可溶で酸性や中性で不溶なセルロース誘導体を用いてマイクロカプセル化してなるマイクロカプセル化性フェロモン物質もしくは農薬に関するものである。

本発明に使用されるセルロース誘導体は、純フェロモンや農薬のマイクロカプセル化基剤として要求される前記①～④の性質をすべて充足しているので、これを用いることによりきわめてすぐれたマイクロカプセル化性フェロモン物質もしくは農薬が得られる。他方またこのセルロース誘導体は中性の水には不溶であるが、エチレングリコールモノエチルエーテルやジエチレングリコールモ

- 8 -

ルースなどが例示される。これらのセルロース誘導体はエチレングリコールモノエチルエーテルやジエチレングリコールモノエチルエーテルなどの有機溶剤に可溶性でかつアルカリ性に可溶性であるが、酸や中性の水には不溶性のものである。したがつて前記したようにこれらのセルロース誘導体は純フェロモン物質や農薬のマイクロカプセル化基剤として理想的な性能を有するもので、特にヒドロキシプロピルメチルセルロースアセテートサクシネットがすぐれている。

つぎに、前記したセルロース誘導体を使用して

特開昭58-183691 (2)

ノノナルエーテルなどの有機溶剤（水より沸点が高く水溶性である）に可溶性であるので本発明のマイクロカプセル化性フェロモン物質もしくは農薬を水中に懸濁させ、これに前記エチレングリコールモノエチルエーテルやジエチレングリコールモノノノナルエーテルのような有機溶剤少量含有させておくことにより、この懸濁液を物に散布すれば農薬粒子（カプセル化剤）のセルロース誘導体が該有機溶剤の作用によつて接着性を発揮し、結果としてそのカプセル化剤物に良好に付着するという利点がもたらされ

本発明に使用されるセルロース誘導体として分子中にカルボキシル基を有しアルカリ性に可溶で酸性や中性で不溶性のものであることが望ましくこれにはヒドロキシプロピルメチルセルロースアセテートサクシネット、ヒドロキシプロピルメチルセルロースフクレート、セルロースアセテートサクシネットおよびエチルカルボキシメチル

- 4 -

するセルロース誘導体を完全に溶解するのに必要な量以上としではならない。通常はセルロース誘導体のカルボキシル基に対して0.7当量～1.0当量のアルカリ液を用するのがよい。なお、のアルカリ物質としては水酸化ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウムおよびりん酸二ナトリウムなどが例示される。

つぎに、このようにして調製したセルロース誘導体の水溶液に、純フェロモン物質や農薬を加てかくはんし、懸濁分散させる。この際のかくはんの強さにより、マイクロカプセルの大きさが

の結果マイクロカプセル化製剤が得られる。このセルロース誘導体を不溶性に変化させるために使用する酸水溶液としては5～20%濃度の塩酸水あるいは酢酸水が好ましく、加える量は水溶液中のアルカリに対し当量～10倍量とすればよい。ついでろ過し、水洗した後、ウエットなままで使用してもよいし、またこれを水懸濁液や乳剤にして使用してもよい。また必要に応じて性フェロモンや農薬があれり放出されない程度に乾燥することにより微粒子剤として使用してもよい。このようにしてマイクロカプセル化した性フェロモン物質もしくは農薬は、前記した必要とされるべき諸性能をすべて満足するが、この形成されるマイクロカプセルをよりきれいな球形のものとするには酸水溶液を加える前に10～20%の硫酸ナトリウム水溶液をセルロース水溶液の半量ないし当量加えるとよい。

このマイクロカプセル化性フェロモン物質もし

一々一

に分散（懸濁）させて使用する場合、散布時作物等に付着させるために必要なメチルセルロースやヒドロキシエチルセルロースの水溶性ペインターと共に非水溶性の接着剤を併用する必要があり、この併用を行わないと、作物に付着した後、風雨によつて容易に地上へ落下しその効果は激減する。

これに対し、本発明のマイクロカプセル化製剤にあつては、水懸濁液として使用する場合に上記のような非水溶性の接着剤は不要で、かわりに沸点が水より高く基剤のセルロース誘導体を溶解する溶剤、たとえば、エターンジリコールモノエテ

特開昭58-183601(3)

くは農薬についてその性フェロモン物質もしくは農薬の放出速度を測定したところ、長期間一定の速度で放出を続け、性フェロモンや農薬が放出されずに残る量もきわめて少ないという理想的な性能が認められ、またこのマイクロカプセル化製剤の水に対する安定性も大きかつた。他方またこのマイクロカプセル化製剤の被覆基剤であるセルロース誘導体は、一般のセルロース誘導体と同様にセルラーゼ等により容易に分解されるすなわち生分解性物質であるという特徴を有する。これは天然界に蓄積せずしたがつて環境汚染をもたらさないというきわめて重要なとされるべき性質である。

性フェロモンや農薬（特に殺虫剤）のマイクロカプセル化製剤を作物に散布付着させて使用する場合、ゼラチンやポリアクリド樹脂をカプセル基剤として使用していると、非水溶性の接着剤を必要とする。たとえば、ゼラチンやポリアクリド樹脂を用いて作ったマイクロカプセル化製剤を水懸濁液中

～8～

溶出であり、接着剤自身が環境破壊物質にもならないという利点も与えられる。

つぎに具体的実施例をあげる。

実施例 1

ヒドロキシプロピルメチルセルロースアセタートサクレネート（ヒドロキシプロピル基DS=0.27、メチル基DS=1.88、アセチル基DS=0.40、チクシニル基DS=0.40）の2ダを0.3%水酸化ナトリウム水溶液60ダ（カルボキシル基に対し0.8当量の水酸化ナトリウム）に完全溶解させた。この液をスターーターにて500r

過液中、洗浄液中とともにエ-11-テトラデセニルアセテートはほとんど移行していなかつた。

どのようにして製造したマイクロカプセル化製剤を一部採取し、過液乾燥にて乾燥したのちこれをアセトンに溶かし内部標準法ガスクロマトグラフィーで分析したところ、マイクロカプセル化製剤全體の重量に対し4.8重量%のエ-11-テトラデセニルアセテートを含有していた。

一方上記カプセル化製剤20.8gを30℃、振速9.5cm/秒の条件下におき、エ-11-テトラデセニルアセテートの放出速度を重量変化と内部標準ガスクロマトグラフィーで定量分析しながら測定したところ、添付図面に示すとおりの結果を得た。周囲から性フェロモンは80日間1.8mg/日とほぼ一定速度で放出を続け、60日間経過後未放出として残つた量は先てんされたフェロモン量の約8%ときわめて少なく、理想的な性能を示した。

- 11 -

ロキシプロビルメチルセルロースアセテートナクレートのかわりにヒドロキシプロビルメチルセルロースフタレート（ヒドロキシプロビル基D₈=0.27、メチル基D₈=1.88、フタリル基D₈=0.67）を使用した以外は実施例1と全く同様を行い、ほぼ同様の結果を得た。

実施例 4

実施例1で作つたマイクロカプセル化製剤1タブを、1タブのメチルセルロースと1タブのエチレングリコールモノエチルエーテルを含む水溶液に懸滴し、戸外25℃のもとでお茶の古い葉に散布し8

特開昭58-183601

さらに乾燥助のカプセル化製剤2タブに水20mlを加え、水中30℃のもとで20日間放置テストを行ない、カプセルを分析したところ、カプセルおよび含有された性フェロモンとも異常はなくこのカプセルの水に対する安定性が高いことが確認された。

実施例 2

実施例1のエ-11-テトラデセニルアセテート（性フェロモン）のかわりに、ダイアルノン（虫剤）を使用した以外は実施例1と全く同様にてマイクロカプセル化製剤を作り、同様にして崩試験および水に対する安定性のテストを行つところ、実施例1とほぼ同様の結果を得た。

ダイアルノン：ジエチル-2-イソブロビル-4-メチル-8-ビリミジニルホスロチオネット

実施例 3

実施例1のマイクロカプセル化基剤であるヒ

- 12 -

4. 図面の簡単な説明

図面は実施例1で作つたマイクロカプセル化製剤について、フェロモン放出速度と放置日数と関係をグラフで示したものである。

過液中、洗浄液中とともに2-11-テトラデセニルアセテートはほとんど移行していなかつた。

このようにして製造したマイクロカプセル化製剤を一部採取し、過液乾燥にて乾燥したのちこれをアセトンに溶かし内部標準法ガスクロマトグラフィーで分析したところ、マイクロカプセル化製剤全体の重量に対し48重量%の2-11-テトラデセニルアセテートを含有していた。

一方上記カプセル化製剤208mgを30℃、過通り5mm/秒の条件下におき、2-11-テトラデセニルアセテートの放出速度を重量変化と内部標準ガスクロマトグラフィーで定量分析しながら測定したところ、横軸圓面に示すとおりの結果を得た。時間から算出フエロモンは80日間1.8mg/日とほぼ一定速度で放出を続け、80日間経過後未放出として残つた量は先てんされたフエロモン量の約5%ときわめて少なく、理想的な性能を示した。

- 11 -

ロキシプロピルメチルセルロースアセテートタクシートのかわりにヒドロキシプロピルメチルセルロースフタレート（ヒドロキシプロピル基D₆ = 0.27、メチル基D₅ = 1.88、フタリル基D₉ = 0.67）を使用した以外は実施例1と全く同様を行い、ほぼ同様の結果を得た。

実施例 4

実施例1で作つたマイクロカプセル化製剤を、1ダのメチルセルロースと1ダのエチレングリコールモノエチルエーテルを含む水溶液に懸濁し、戸外25℃のもとでお茶の古い葉に散布し8

特開昭58-183681(

さらに乾燥前のカプセル化製剤2ダに水200mlを加え、水中30℃のもとで20日間放置テストを行ない、カプセルを分析したところ、カプセルおよび含有された性フエロモンとも異常はなくこのカプセルの水に対する安定性が高いことが認された。

実施例 2

実施例1の2-11-テトラデセニルアセテート（性フエロモン）のかわりに、ダイアジノン（虫剤）を使用した以外は実施例1と全く同様にてマイクロカプセル化製剤を作り、同様にして油試験および水に対する安定性のテストを行つところ、実施例1とほぼ同様の結果を得た。

ダイアジノン：ジエチル-2-イソブロビル4-メカル-8-ビリミジニルホスロチオキート

実施例 3

実施例1のマイクロカプセル化製剤であると

- 12 -

4. 圓面の簡単な説明

圓面は実施例1で作つたマイクロカプセル化製剤について、フエロモン放出速度と放置日数と関係をグラフで示したものである。

特開昭58-183601 (5)

